

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-211533

(43)Date of publication of application : 11.08.1995

(51)Int.Cl.

H01F 1/34  
C01G 49/00  
C04B 35/38

(21)Application number : 06-006606

(71)Applicant : NIPPON STEEL CORP

(22)Date of filing : 25.01.1994

(72)Inventor : SASAKI NORIMASA  
NARUKI SHINYA  
ITO KAORU  
YAMANA YOSHITAKA

## (54) METHOD OF MANUFACTURING OXIDE MAGNETIC MATERIAL

## (57)Abstract:

**PURPOSE:** To provide a method of manufacturing an oxide magnetic material at high frequency, a low loss, and remaining magnetic density for use in a switching power supply, etc.

**CONSTITUTION:** Fe, Mn, and Zn are mixed at a specific ratio in a type of a chloride solution, and sprayed and heat-dissolved in a spray calciner to form a mixed oxide powder comprising  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   $71.5 \pm 2\%$ ,  $\text{MnO}$   $22.5 \pm 2\%$ , and  $\text{ZnO}$   $6.0 \pm 2\%$ . Thereafter, they are heat-treated at  $1000^\circ \text{C}$  or less and further  $\text{SiO}_2$  0.005 to 0.1%,  $\text{CaO}$  0.01 to 0.5%,  $\text{TiO}_2$  0.01 to 0.5%,  $\text{V}_2\text{O}_5$  0.005 to 0.1%, and  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  0.005 to 0.1% are used as sub-components and added simultaneously, and a calcine powder being controlled to be a mean particle diameter 0.3 to  $1.0\mu\text{m}$  is used as a main material, and granulated and molded to burn at 1000 to  $1200^\circ \text{C}$ . Thus, it is possible to obtain an oxide magnetic material having a small loss value, a great saturated magnetic flux density, and further small remaining magnetic flux density, suitable for a transformer material for a high frequency switching power supply.

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平7-211533

(43)公開日 平成7年(1995)8月11日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
H01F 1/34				
C01G 49/00		B		
C04B 35/38				
			H01F 1/34	B
			C04B 35/38	Z
			審査請求 未請求 請求項の数2	OL (全4頁)

(21)出願番号	特願平6-6606	(71)出願人	000006655 新日本製鐵株式会社 東京都千代田区大手町2丁目6番3号
(22)出願日	平成6年(1994)1月25日	(72)発明者	佐々木 教 真 神奈川県川崎市中原区井田1618番地 新日本製鐵株式会社先端技術研究所内
		(72)発明者	成 木 紳 也 神奈川県川崎市中原区井田1618番地 新日本製鐵株式会社先端技術研究所内
		(72)発明者	伊 藤 薫 神奈川県川崎市中原区井田1618番地 新日本製鐵株式会社先端技術研究所内
		(74)代理人	弁理士 佐藤 一雄 (外2名) 最終頁に続く

(54)【発明の名称】 酸化物磁性材料の製造方法

(57)【要約】

【目的】 スイッチング電源などに使用される高周波で低損失、かつ、残留磁束密度が小さい、酸化物磁性材料の製造方法を提供する。

【構成】 Fe、MnおよびZnを塩化物溶液の形で所定の割合で混合し、噴霧焙焼炉中に噴霧して熱分解し、重量%で、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 71.5±2%、MnO<sub>2</sub> 2.5±2%、ZnO 6.0±2%からなる混合酸化物粉末とした後、1000℃以下で熱処理し、さらにSiO<sub>2</sub> 0.005~0.1%、CaO 0.01~0.5%、TiO<sub>2</sub> 0.01~0.5%、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 0.005~0.1%、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 0.005~0.1%を副成分として同時に添加し、平均粒子径を0.3~1.0μmに制御した仮焼粉を主原料として用い、造粒、成形後、1000~1200℃で焼成する。

【効果】 損失値が小さく、飽和磁束密度が大きく、さらに、残留磁束密度が小さい、高周波スイッチング電源用トランス材料に適した酸化物磁性材料が得られる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 Fe、Mn および Zn を塩化物溶液の形で所定の割合で混合し、得られる液を噴霧焙焼炉中に噴霧して熱分解し、重量%で、

Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 71.5±2%、

MnO 22.5±2%、

ZnO 6.0±2%、

からなる混合酸化物粉末とした後、200℃以上、1000℃以下で熱処理し、その後、混合、解砕して平均粒子径を0.3～1.0μmに制御した仮焼粉を主原料として用い、造粒、成形後、1000～1200℃で焼成する酸化物磁性材料の製造方法。

【請求項 2】 Fe、Mn および Zn を塩化物溶液の形で所定の割合で混合し、得られる液を噴霧焙焼炉中に噴霧して熱分解し、重量%で、

Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 71.5±2%、

MnO 22.5±2%、

ZnO 6.0±2%、

からなる混合酸化物粉末とした後、200℃以上、1000℃以下で熱処理し、これに副成分として

SiO<sub>2</sub> 0.005～0.100%、

CaO 0.010～0.500%、

TiO<sub>2</sub> 0.010～0.500%、

V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 0.005～0.100%、

Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 0.005～0.100%、

を同時に添加し、その後、混合、解砕して平均粒子径を0.3～1.0μmに制御した仮焼粉を主原料として用い、造粒、成形後、1000～1200℃で焼成することを特徴とする高周波で低損失かつ残留磁束密度の小さい酸化物磁性材料の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、数百kHz～数MHzのスイッチング周波数をもつ高周波スイッチング電源用トランスコアに用いられる、高周波で低損失な酸化物磁性材料の製造方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 近年、エレクトロニクス機器の小型化に伴って、その電力供給源として使用されているスイッチング電源の小型化も進んできた。このスイッチング電源の小型化にはスイッチング周波数の高周波化が不可欠であり、使用される電子部品も高周波で低損失なものが必要となってきた。特にトランス材料である酸化物磁性材料は、トランジスタ、FET、ダイオードなどと共に、高周波での低損失化が望まれている電子材料である。

【0003】 このような状況において、高周波で低損失な酸化物磁性材料として、特開平4-230006、特開平4-150007、特開平4-192309、特開平4-192308、特開平4-149026、特開平3-242906、特開平3-248405、特開平3-

-248404、特開平3-233907、特開平3-212906、特開平3-184307、特開平3-163802、特開平3-135002、特開平3-135003、特開平3-93667、特開平2-156511、特開平1-224265、特開昭63-319254、特開昭60-91602などの公報にみられるように各種の提案がなされている。

【0004】 これらの高周波で低損失な酸化物磁性材料の特徴としては、酸化物による粒界層の高抵抗化と結晶粒径の微細化などが挙げられる。特に結晶粒径に関しては、微細であると同時に粒径が揃っていることが必要である。そのため、製造に用いられる仮焼粉も微細で粒径が揃っていることが要求される。

【0005】 従来、仮焼粉には次のような製法によるものが使われていた。すなわち、主成分であるFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、MnO、ZnOなどをボールミルで混合し、それを乾燥した後、ロータリーキルンなどで仮焼し、その後再びボールミルによって粉碎することによって得た仮焼粉である。

【0006】 このような従来の仮焼粉を用いた方法では、高周波低損失磁性材料に適した、粒径の揃った微細な仮焼粉を得るためには、仮焼温度を下げ粉碎時間を長くする必要があった。しかし、仮焼温度を低くすると原料粉の焼結反応が進まず、成分の均質化がなされない。また、粉碎時間を長くするとボールミルからの不純物の混入量が増し、異常粒成長などの原因となる。

【0007】 このような従来の製造方法によって得た仮焼粉を用いて高周波で低損失な酸化物磁性材料を作ろうとすると、残留磁束密度の増加を生じてしまう。残留磁束密度と残留磁束密度の差を小さくすることとなる。このため、実際にスイッチング電源に搭載したときの発熱が大きくなるなどの問題があった。

## 【0008】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、高周波で低損失、かつ、残留磁束密度が小さい酸化物磁性材料を得るための製造方法を提供することを目的とする。

## 【0009】

【課題を解決するための手段】 上記課題を解決するため、本発明では原料仮焼粉として酸化物磁性材料を構成する主要金属成分の塩化物溶液を噴霧焙焼して得られる粉を使用し、この原料粉の粒径を制御し、さらに、添加物を加えることにより、通常の方法では得られなかった低い残留磁束密度と高周波での低損失を合わせ持つ酸化物磁性材料を得た。すなわち、Fe、MnおよびZnを塩化物溶液の形で所定の割合で混合し、得られる液を噴霧焙焼炉中に噴霧して熱分解し、重量%で、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 71.5±2%、MnO 22.5±2%、ZnO 6.0±2%、からなる混合酸化物粉末とした後、200℃以上、1000℃以下で熱処理し、これに副成分としてSiO<sub>2</sub> 0.005～0.100

%、CaO 0.010~0.500%、TiO<sub>2</sub> 0.010~0.500%、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 0.005~0.100%、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 0.005~0.100%、を同時に添加し、その後、混合、解砕して平均粒子径を0.3~1.0μmに制御した仮焼粉を主原料として用い、この仮焼粉を造粒、成形し、雰囲気酸素分圧を制御しながら1000~1200℃で焼成することを特徴とする高周波で低損失かつ残留磁束密度の低い酸化物磁性材の製造方法である。

【0010】以下に、本発明を詳細に説明する。まず、噴霧焙焼した混合酸化物粉末を用いた理由について述べる。噴霧焙焼炉中に噴霧して熱分解した混合酸化物粉末は、塩化物溶液の形で所定の割合で混合するため十分な均質化が行われており、また、小さな粒径の粉が得られるため粉砕はほとんど必要とせず、不純物の混入が少ないためである。これにより粒径の揃った、微細な結晶粒径の焼成体となる。

【0011】次いで、混合酸化物粉末の主成分およびその組成範囲について説明する。本発明の混合酸化物は、重量%で、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 71.5±2%、MnO 22.5±2%、ZnO 6.0±2%としたが、これを外れるとヒステリシス損失が増加し、損失が著しく悪化するためこのように定めた。また、混合酸化物粉末の熱処理の温度範囲を200℃以上、1000℃以下に定めたが、これは塩素を十分に除き、不必要な粒成長をさせないようにするためである。

【0012】本発明において微量添加物を加えることは必須条件であり、その条件としてはSiO<sub>2</sub>、CaO、TiO<sub>2</sub>、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を用いた場合、特に好ましい特性が得られる。各添加物の適正組成範囲(重量%)及びその理由は、次の通りである。SiO<sub>2</sub> 0.005~0.100%、CaO 0.010~0.500%の範囲は、下限値以下では高周波で低損失とならず、上限値以上では異常粒成長が発生するからである。TiO<sub>2</sub> 0.010~0.500%の範囲は、下限値以下では高周波で低損失とならず、上限値以上では異常粒成長が発生する。V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 0.005~0.100%、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 0.005~0.100%の範囲は、下限値以下では1000~1200℃の焼成では十分な密度の焼成体を得られず、また上限値以上では結晶粒の巨大化により高周波での損失が悪化するからである。

【0013】酸化物磁性材料を得るための焼成は、通常の製法と同様に酸素分圧を制御しながら行うが、焼成温\*

\*度は1000~1200℃の比較的低温度とする。これはこの温度以上では、結晶粒径が大きくなりすぎ高周波での損失が悪化するためであり、下限値以下では焼結が進まないためである。また、混合、解砕して得られる平均粒子径を0.3~1.0μmの範囲に制御すると、焼成温度1000~1200℃と比較的低いにもかかわらず空孔などが残らない、緻密な、結晶粒径が0.5~5.0μmの範囲の残留磁束密度の低い、高周波で低損失な酸化物磁性材料が得られる。

#### 【0014】

【実施例】以下、本発明を実施例に基づいてさらに説明する。

#### 実施例

噴霧焙焼によりFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 71.6wt%、MnO 22.5wt%、ZnO 5.9wt%の組成を有する酸化物混合粉末を製造した。これを800℃で熱処理後、SiO<sub>2</sub> 0.025wt%、CaO換算でCaCO<sub>3</sub>を0.110wt%、TiO<sub>2</sub>を0.190wt%、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を0.012wt%、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を0.022wt%添加し、ボールミルにて混合した。混合後の粉体をレーザー回折式粒度分布測定器によって測定したところ、平均粒径は0.83μmであった。

【0015】この仮焼粉にポリビニールアルコールを1%添加し、水分が3±0.5%になるように調整し、焼結後の形状がおよそ外形25mm、内径16mm、高さ7mmであるリング状のコアに成形圧力2t/cm<sup>2</sup>でプレスした。この成形体を酸素濃度を制御した窒素雰囲気中で、1100℃、5時間焼成した。得られた高周波損失酸化物磁性材料の磁束密度50mT、周波数500kHzおよび1MHzにおける損失値の最低値、飽和磁束密度、残留磁束密度を、表1に示す。

#### 【0016】比較例

比較例1は、市販されている高周波低損失酸化物磁性材料である。また、比較例2は、仮焼粉として従来の方法、すなわち、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 71.6wt%、MnO 22.5wt%、ZnO 5.9wt%を混合後、1050℃で仮焼して得られた粉を粉砕して得た仮焼粉を用いて作製したものである。

【0017】比較例1および2の各材料について実施例と同様に、損失値、飽和磁束密度、残留磁束密度を測定した。その結果を、表1に併せて示す。

#### 【0018】

表 1

	損失値 (kW/m <sup>3</sup> )		飽和磁束密度 (mT)	残留磁束密度 (mT)
	500kHz	1MHz		
	50mT	50mT		
実施例1	48	280	525	160
比較例1	80	310	470	190
比較例2	100	400	500	200

【0019】表1から明らかなように、本発明の製造方法で作製した酸化物磁性材料の損失値は、比較例1および比較例2よりも小さく、その最低値は500kHzで $48\text{ kW/m}^3$ 、1MHzで $280\text{ kW/m}^3$ となっている。また、飽和磁束密度と残留磁束密度についても、本発明の仮焼粉を用いた酸化物磁性材料は、飽和磁束密\*

\*度が525mTと非常に大きく、さらに残留磁束密度も160mTと低くなっている。

【発明の効果】以上のように、本発明によれば高周波で低損失だけでなく、飽和磁束密度の大きい、残留磁束密度の小さい酸化物磁性材料が得られ、そのため高周波スイッチング電源用のトランスとして使用できる。

---

フロントページの続き

(72)発明者 山 名 芳 隆

千葉県富津市新富20-1 新日本製鐵株式  
会社設備技術センター内新規プロセスエン  
지니어リング部